

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-193911

(43)Date of publication of application : 03.08.1993

---

(51)Int.Cl. C01B 13/32  
C01B 33/18

---

(21)Application number : 04-025642

(71)Applicant : SHIN ETSU CHEM CO LTD  
TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 16.01.1992

(72)Inventor : KONYA YOSHIHARU  
KAMIYA SUMIO  
ABE SAN

---

### (54) PRODUCTION OF METAL OXIDE POWDER

#### (57)Abstract:

PURPOSE: To control the particle diameter of the metal oxide powder by regulating the heat of a reaction generated at the time of producing metal oxide powder from metal powder.

CONSTITUTION: When metal powder fed with carrier gas and oxygen are introduced into a flame from a burner formed with combustible gas and metal oxide powder is produced by continuous oxidation combustion, carbon dioxide is fed into the burner.

---

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 18.12.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3225073

[Date of registration] 24.08.2001

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 特許公報 (B2)

(11)特許番号

特許第3225073号

(P3225073)

(45)発行日 平成13年11月5日 (2001.11.5)

(24)登録日 平成13年8月24日 (2001.8.24)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

C 01 B 13/32  
33/18

識別記号

F I

C 01 B 13/32  
33/18

Z

請求項の数4(全4頁)

(21)出願番号

特願平4-25642

(22)出願日

平成4年1月16日 (1992.1.16)

(65)公開番号

特開平5-193911

(43)公開日

平成5年8月3日 (1993.8.3)

審査請求日

平成10年12月18日 (1998.12.18)

(73)特許権者

000002060  
信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(73)特許権者

000003207  
トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72)発明者

紺谷 義治

群馬県安中市磯部2丁目13番1号 信越  
化学工業株式会社 磯部工場内

(72)発明者

▲神▼谷 純生

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自  
動車株式会社内

(74)代理人

100052823

弁理士 山本 亮一 (外1名)

審査官 安齋 美佐子

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 金属酸化物粉末の製造方法

1

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】 キャリアガスで同伴した金属粉末と酸素とを可燃性ガスにより形成したバーナー火炎中に導入し、連続的な酸化燃焼によって金属酸化物粉末を製造する方法において、バーナー中に二酸化炭素を供給することを特徴とする金属酸化物粉末の製造方法。

【請求項2】 二酸化炭素を金属粉末のキャリアガスに混入する請求項1に記載した金属酸化物粉末の製造方法。

【請求項3】 二酸化炭素を金属粉末の外周部から供給し、その外周から酸素を供給する請求項1に記載した金属酸化物粉末の製造方法。

【請求項4】 二酸化炭素を酸素と混合して供給する請求項1に記載した金属酸化物粉末の製造方法。

【発明の詳細な説明】

2

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は金属酸化物粉末の製造方法、特に粉末の粒子径を容易に制御することができる金属酸化物粉末の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 金属酸化物粉末の製造方法については、金属粉末を火炎中に導入し、酸素含有雰囲気下で連続的に爆発燃焼を発生させる方法が公知とされており(特開昭60-255602号公報参照)、これによれば酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化アルミニウム、二酸化けい素などを超微粒子状で熱効率、量産性よく生産することができるとしている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、この方法では酸化反応熱が大きく、金属粉末が瞬時に溶融微細化なら

びに蒸発し、生成する金属酸化物粉末の粒子径は反応熱に大きく支配されるのであるが、この方法ではその反応熱の調整を行なうことができないために、ここに得られる金属酸化物の粒子径を制御することが困難であるという欠点がある。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明はこのような欠点を解決した金属酸化物粉末の製造方法に関するものであり、これはキャリアガスを同伴した金属粉末と酸素とを可燃性ガスにより形成したバーナー火炎中に導入し、連続的な酸化燃焼によって金属酸化物粉末を製造する方法において、バーナー中に二酸化炭素を供給することを特徴とするものである。

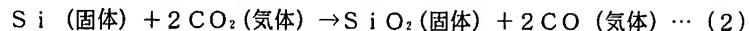
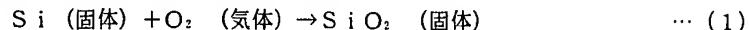
【0005】すなわち、本発明者らは粒子径の制御された金属酸化物粉末の製造方法について種々検討した結果、支燃性ガスとして二酸化炭素を使用すれば金属粉末と二酸化炭素との反応熱が金属粉末と酸素との反応熱より小さいので、この二酸化炭素の供給比率を変えれば反応熱を制御することができるということを見出し、したがってこれによれば生成する金属酸化物の粒子径を制御することができることを確認して本発明を完成させた。以下にこれをさらに詳述する。

【0006】

【作用】本発明は金属酸化物粉末の製造方法に関するものであり、これは上記したように金属粉末を酸素と共にバーナー火炎中に導入し、連続的な酸化燃焼によって金属酸化物粉末を製造する方法において、このバーナーに二酸化炭素を供給して金属酸化物粉末の粒子径を制御するというものである。

【0007】本発明は金属酸化物粉末の製造方法に関するものであるが、この金属としてはシリコン、アルミニウム、マグネシウム、チタン、ジルコニウム、その他ムライト組成を形成するアルミニウムとシリコンとの複合物などの複合物が例示される。この金属は本発明の目的が金属酸化物粉末であることから、金属粉末として供給されるが、これは高純度金属酸化物粉末を得るために純度が99.9%以上のものとすることがよい。

【0008】この金属粉末はバーナー火炎中における酸化燃焼によって金属酸化物粉末とされるのであるが、バーナーへの導入はキャリアガスへの同伴によって行なわれる。このキャリアガスとしては窒素、ヘリウム、アルゴンなどの不活性ガスまたは空気が用いられる。この場\*



(1)式では反応熱が  $\Delta H_r = -217.6 \text{ Kcal/mol}$  、(2)式では反応熱が  $\Delta H_r = -82.4 \text{ Kcal/mol}$  であることから、二酸化炭素のほうが反応熱がはるかに小さいので、この酸素と二酸化炭素との供給比率を変えることによって反応熱を制御することができ、したがって得られる金属酸化物粉末の粒子径を制御する

\* 合における金属粉末の粒度分布やキャリアガス中の金属粉末濃度は粉塵爆発に必要な粉塵雲を形成する条件の範囲内にあればよく、具体的には200メッシュの篩を通過し、なだらかな粒度分布をもち、爆発下限以上の粉塵濃度をもつものとすればよいが、好ましくは粒子径が10  $\mu\text{m}$  以下の微粉を含むものとすることがよい。

【0009】この金属粉末はバーナー火炎中での爆発燃焼によって金属酸化物粉末とされるのであるが、この金属粉末の連続爆発を安定して形成させるための種火としては可燃性ガスによる燃焼火炎を使用することがよい。この可燃性ガスとしてはメタン、プロパンなどのような化学式  $C_2H_{6n+2}$  で示される炭化水素ガスまたは水素ガスを用いればよいが、この種火用の燃焼火炎は粉塵爆発を形成するのに必要な最小着火エネルギーを与えればよいので、反応容器の熱負荷を減らすということからも可燃性ガスをできるだけ少ないものとすることがよい。

【0010】この金属粉末および燃焼用ガスは通常室温で供給されるが、反応容器は燃焼火炎温度が1,000  $^{\circ}\text{C}$  以上となるためにアルミニウムなどの耐熱材料で内張りしたものとすればよく、これは煙道側に排風機を設けて吸引し、圧力が大気圧基準で-200mHgから-10mHgの負圧となるようにすることがよい。

【0011】この金属粉末はキャリアガスに同伴されてバーナーから反応容器内に放出され、種火火炎によって着火し、連続的に爆発燃焼して金属酸化物粉末となり、反応容器中の捕集機で回収されるのであるが、この場合には酸化反応熱が大きいことから、生成する金属酸化物粉末の粒子径を制御することができず、このようにして得られた金属酸化物粉末は通常その粒子径が微細なものとなる。

【0012】本発明においてはこの公知の方法においてバーナーに二酸化炭素が供給され、これによって反応熱が制御される。すなわち、燃焼により生成する金属酸化物粉末の粒子径は金属および金属酸化物の融点、沸点、表面張力などの物性によって相異するが、この粒子径は主として反応熱によって支配され、金属粉末の燃焼反応熱が大きい程、金属粉末の溶融微細化と蒸発が促進されるために生成する金属酸化物粉末は微細化する。

【0013】しかし、ここに支燃性ガスとして酸素以外に二酸化炭素を添加すると、例えばシリコンの反応例は次式のようになり、

ことができる。

【0014】この二酸化炭素の添加方法はどのような方法で行なってもよいが、これは例えば二酸化炭素を金属粉末を搬送するキャリアガスに添加してもよいし、二酸化炭素を金属粉末の外周部に供給し、さらにその外周に酸素を供給する方法としてもよく、さらには二酸化炭素

を酸素ガスに混合してもよいが、これは二酸化炭素を金属粉末の反応中心域に供給することが好ましい。

【0015】このようにして得られた金属酸化物粉末はサイクロン、バグフィルなどの分離捕集機で採取されて製品とされるが、これによればその反応熱が二酸化炭素の供給により低減されるので、従来法にくらべて粒子径の大きいものとして得ることができる。

【0016】つぎに本発明による金属酸化物粉末製造方法に使用される反応装置を添付の図面について説明する。図1はこの金属酸化物粉末製造装置の縦断面図を示したものであるが、金属粉末2は原料ホッパー1カラ取り出され、このものはキャリアガス3に同伴され、導入管4を通ってバーナー5に導かれ、耐熱レンガ7で内張りされた反応容器6内に放出される。この金属粉末2は反応容器6の中に形成されている種火火炎によって酸素と二酸化炭素を含む雰囲気下で着火して燃焼火炎8を形成し、この燃焼反応により生成した金属酸化物粉末は排ガスと共に煙道9を通って冷却されたのち、捕集機10で分離捕集されるが、排ガスは排風機11により排気される。

【0017】なお、図2はここに使用されるバーナーの縦断面図を示したものであるが、これは同心円状の供給口をもつもので、中心に金属粉末導入管4があり、その外周にガス供給口21、22、23が配されたものとされている。

#### 【0018】

【実施例】つぎに本発明の実施例、比較例をあげる。

#### 実施例1

図1に示した反応装置を使用し、平均粒径が20μm、純度が99%であるシリコン粉末を供給量3kg/時で、4Nm<sup>3</sup>/時の二酸化炭素と窒素とを3:1で混合したキャリアガスに同伴させてバーナーの中心導入管に供給した。

【0019】反応容器はアルミナレンガで内張りした内径が350mm、高さが2,500mmの円筒形のものとし、バーナーの供給口から酸素ガスを1.8Nm<sup>3</sup>/時、プロパンを0.1Nm<sup>3</sup>/時、酸素を0.8Nm<sup>3</sup>/時で供給し、シリコン粉を供給する前に反応容器内に火炎を形成させておき、シリコン粉末が供給されたらここに燃焼火炎が発生するようにしておいたので、上記によるシリコン粉末の供給と共に燃焼火炎が発生し、これによつてシリコン粉末は酸素および二酸化炭素と反応してシリカ粉末が生成した。

【0020】この場合、燃焼時のアルミナレンガの表面温度を白金ロジウム熱電対で測定したところ、最高1,200°Cを示したが、生成したシリカ粉末を煙道途中のバグフィルターで捕集し、得られたシリカ粉末の透過電

子顕微鏡で観察したところ、このものは真球状のアモルファスで平均粒子径が3.5μmのものであり、純度分析では99.5%のものであった。なお、運転時間2時間で捕集したシリカ粉末は12.2Kgであり、収率は95%であった。

#### 【0021】実施例2

上記した実施例1におけるキャリアガスの混合比を、二酸化炭素と窒素との混合比が1:1としたほかは実施例1と同じ条件でシリカの合成を行なったところ、燃焼時のアルミナレンガの表面温度は最高1,350°Cを示し、得られたシリカ粉末は真球状のアモルファスで平均粒子径が2.3μm、純度99.5%のものであり、収率は93%であった。

#### 【0022】比較例

キャリアガスをすべて窒素ガスからなるものとしたほかは実施例1と同じ条件でシリカの合成を行なったところ、燃焼時のアルミナレンガの表面温度は1,500°Cを示し、得られたシリカ粉末は真球状のアモルファスで純度が97.6%のもので、収率は92%であったが、

このものは平均粒子径が1.4μmとして微細なものであった。

#### 【0023】

【発明の効果】本発明は金属酸化物粉末の製造方法に関するものであり、これは前記したように金属粉末と酸素とをバーナー火炎中に導入して連続的な酸化燃焼によって金属酸化物粉末を製造する方法において、バーナー中に二酸化炭素を供給することを特徴とするものであるが、これによれば二酸化炭素が支燃性ガスとなって金属粉末と反応して金属酸化物粉末が生成されるが、これ場合の反応熱が金属粉末と酸素との反応熱にくらべてはるかに小さいので、全体として反応熱が減少し、したがつて目的とする金属酸化物粉末の粒子径が制御され、支燃性ガスが酸素だけのときよりも金属酸化物粉末を粒子径の大きなものに制御することができるという有利性が与えられる。

#### 【図面の簡単な説明】

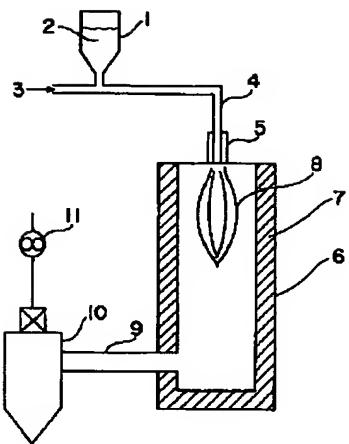
【図1】本発明による金属酸化物粉末製造方法に使用される反応装置の縦断面図を示したもの。

【図2】本発明による金属酸化物粉末製造装置におけるバーナーノズルの縦断面図を示したもの。

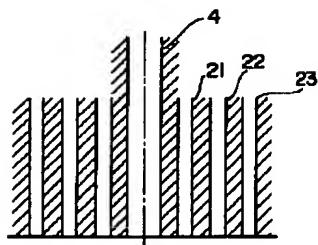
#### 【符号の説明】

1……原料ホッパー、2……金属粉末、3……キャリアガス、4……導入管、5……バーナー、6……反応容器、7……耐熱レンガ、8……火炎、9……煙道、10……捕集機、11……排風機、21、22、23……ガス供給口。

【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

(72)発明者 安部 賛  
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(56)参考文献 特開 昭61-205604 (J P, A)  
特開 昭63-252910 (J P, A)  
特開 平2-199004 (J P, A)

(58)調査した分野(Int.C1. , DB名)

C01B 13/32  
C01B 33/18  
C01F 5/04  
C01F 7/42  
C01G 23/047  
C01G 25/02